

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-337290

(43)Date of publication of application : 27.11.2002

(51)Int.Cl.

B32B 27/36  
C08L 67/02

(21)Application number : 2001-146583

(71)Applicant : TOYOBO CO LTD

(22)Date of filing : 16.05.2001

(72)Inventor : IMAI KAZUMOTO  
MORI KEIJI  
ODA NAONOBU

## (54) LAMINATED POLYESTER FILM

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a laminated polyester film having easily cutting properties, twist fixing properties and printability noticeable among characteristics possessed by cellophane and together having heat resistance, moistureproofness, transparency, aroma retention or the like being excellent characteristics of a polyester film.

SOLUTION: The laminated polyester film is constituted by laminating a polyester resin mixture layer (B), which comprises a mixture of 98-70 wt.% of a crystalline polyester resin (a) containing 80 mol% or more of terephthalic acid and having a thickness of 5-60% of the total thickness and 2-30 wt.% of a block copolyester resin (b) consisting of a crystal segment with a melting point of 170° C or higher and a soft polymer with a melting or softening point of 100° C or lower and a mol.wt. of 400-8,000 and has a melting point higher than that of a polyester resin layer (A) by 10° C or higher, on at least the single surface of the polyester resin layer (A).

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1]At least on one side of a polyester resin layer (A), to total thickness, not less than 5%, an unextended laminated film which laminated the following polyester resin layer (B) of 60% or less of thickness Beyond a temperature lower 10 \*\* than the melting point of a polyester resin layer (A) at least after uniaxial stretching. And a laminated polyester film heat-treating at temperature of less than the melting point of a polyester resin layer (B).

polyester resin layer (B): — terephthalic acid — more than 80mol% — 98 to 70 % of the weight of crystalline polyester resin (a) to contain. A crystal segment and the melting point, or softening temperature with a melting point of not less than 170 \*\* 100 \*\* or less, A polyester resin layer which a molecular weight consists of a mixture of 2 to 30 % of the weight of block copolymerized polyester (b) which consists of an elasticity polymer of 400-8000, and has the melting point higher not less than 10 \*\* than the melting point of a polyester resin layer (A).

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to a polyester oriented film. The heat resistance which is the characteristic which was excellent in the polyester oriented film in detail, The characteristic of a practical use side is maintained without losing a smell retaining property, a water resisting property, etc., and it excels in an adhesive property and printing nature, and is related with the polyester oriented film useful as the film for a package, or a film for tapes which twisted with still better tear nature and possesses a sex.

[0002]

[Description of the Prior Art]From the former, cellophane is known as a film which was excellent in the sectility. Cellophane is appointed to a position of a trust as an object for various wrapping and adhesive tape with the characteristics, such as the outstanding transparency, easy-tearability, twist wrinkles stability. However, on the other hand, since cellophane had hygroscopicity, it was difficult to change the characteristic according to a season and to always supply the thing of fixed quality. Although the goodness of the outstanding characteristics, such as the tough nature of the extended polyethylene terephthalate phthalate film, heat resistance, a water resisting property, and transparency, is bought and the bag for a package which used polyethylene terephthalate as the base film, adhesive tape, etc. are used, While it had these outstanding characteristics, it was hard to cut, and since the fault which cannot tear the mouth of the bag for a package easily, the fault which adhesive tape cannot cut easily, and twist stability were inferior, it twisted, and there was a fault of being unable to use for a package. As a method of solving the above-mentioned fault, That (JP,56-50692,B) to which copolymerization of the polyester film (JP,55-8551,B) made [ 1 shaft orientations ] to carry out orientation, the diethylene glycol component, etc. was carried out, the thing (JP,55-20514,B) using polyester resin of low molecular weight, etc. are proposed.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]However, the method made [ 1 shaft orientations ] to carry out orientation in the above-mentioned conventional technology, The method of being hard to go out in addition to an orientation direction, although it goes out easily linearly to an orientation direction, and carrying out copolymerization of the diethylene Glico Lulu ingredient etc. so much has the fault that the original characteristic of polyethylene terephthalate is lost by copolymerization. It becomes easy to generate the trouble [ stretching process ] of a film tear, and the method of using polyester resin of low molecular weight was not practical. Namely, easy-tearability among the characteristics that cellophane has this invention, twist stability, It inquires for the purpose of obtaining the film which doubles and has heat resistance, dampproofing, transparency, a smell retaining property, etc. which are the characteristic which has these characteristics and was further excellent in polyester film paying attention to printing nature, and this is attained.

[0004]

[Means for Solving the Problem]this invention receives at least one side of a polyester resin layer (A) at total thickness — terephthalic acid of not less than 5% and 60% or less of thickness — more than 80mol% — 98 to 70 % of the weight of crystalline polyester resin (a) to contain. A crystal segment and the melting point, or softening temperature with a melting point of not less than 170 \*\* 100 \*\* or less, A molecular weight consists of a mixture of 2 to 30 % of the weight of block copolymerized polyester (b) which consists of an elasticity polymer of 400-8000, an unextended laminated film which laminated a polyester resin mixture layer (B) which has the melting point higher not less than 10 \*\* than the melting point of a polyester resin layer (A), It is a laminated polyester film heat-treating after uniaxial stretching at least at temperature of beyond a temperature lower 10 \*\* than the melting point of a polyester resin layer (A), and less than the melting point of a polyester resin mixture layer (B).

[0005]Namely, this invention is beyond a temperature lower 10 \*\* than the melting point of polyester resin (A) of a side which has the low melting point after extending a polyester laminated film in which the melting points differ, And by heat-treating at temperature of less than the melting point of a polyester resin mixture (B) of a side which has the high melting point, A polyester resin layer (A) collapses and orientation in a stretching process The heat resistance of polyester resin, The characteristics, such as transparency, a water resisting property, and a smell retaining property, constitute a layer which tears maintaining, twists with a sex and has stability, A polyester resin mixture layer (B) by making it a laminated film which constitutes two sorts of constituting a layer which has the outstanding characteristics, such as the original heat resistance of polyester film which maintained orientation, of different characteristics. Having the original outstanding characteristic of polyester film, twist with good tear nature and it finds out that polyester film with the opposite characteristic of providing stability is obtained, a polyester resin mixture layer (B) — terephthalic acid — more than 80mol% — 98 to 70 % of the weight of crystalline polyester resin (a) to contain. A crystal segment and the melting point, or softening temperature with a melting point of not less than 170 \*\* 100 \*\* or less, By using a mixture of 2 to 30 % of the weight of block copolymerized polyester (b) in which a molecular weight consists of an elasticity polymer of 400-8000, a remarkable improvement of printing nature, easy tear \*\*\*, etc. is found, and it came to complete this invention.

[0006]Although crystalline polyester (a) is polyester which makes ethylene terephthalate a main repeating unit and its polyethylene terephthalate (PET) is the optimal in a polyester resin mixture (B) in this invention, Copolymers of PET, polybutylene terephthalate (PBT) and PET, polyethylenenaphthalate (PEN), etc. or these mixtures can be used. As this polyester, 0.50 or more dl/g 0.90 or less dl/g limiting viscosity is 0.80 or less dl/g of 0.60 or more dl/g still more preferably. When limiting viscosity is less than 0.50 dl/g, a film becomes weak and film production becomes difficult. When a bigger thing than 0.90 dl/g is used, it is inferior to extrusion-molding nature. Although a polymerization method in particular of crystalline polyester (a) is not

limited, in order to make limiting viscosity into a suitable range, a solid-state-polymerization method can be used.

[0007]In block copolymerized polyester (b) which constitutes this polyester resin mixture (B), when it is considered as a polymer only of the ingredient, the melting point is a not less than 170 °C thing, but a crystal segment with a melting point of not less than 170 °C. For example, residue of aromatic dicarboxylic acid, such as terephthalic acid, isophthalic acid, 2, 6-naphthalene dicarboxylic acid, Although polyester etc. which consist of residue of aliphatic series, such as ethylene glycol, propylene glycol, butanediol, pentamethylene glycol, P-xylene glycol, and cyclohexane dimethanol, aromatic series, and alicyclic diols can be used. It is desirable for especially terephthalic acid residue to occupy more than 80mol%.

[0008]The melting point or softening temperature at the time of measuring elasticity polyester of the molecular weights 400–8000 only by this segment constituent says a thing 100 °C or less. When a molecular weight uses 400 or less thing, the melting point is low, adhesiveness is size, and block copolymerized polyester obtained becomes difficult for combination processability to a film. When a molecular weight exceeds 8000, an elasticity polymer carries out layer separation and very high melt viscosity is shown. When become hard weak character, and extraction from a copolymerization reaction postpolymerization iron pot becomes difficult and this block copolymerized polyester is used for film shaping, transparency is poor and is not preferred. A thing of a molecular weight of 800–4000 is especially preferably good. A rate of a low melting point elasticity polymer in inside of block copolymerized polyester is 1–12-mol% of the range. When the characteristic as an elasticity polymer is not obtained in the case of below 1mol% but 12-mol% is exceeded, distribution of block copolymerized polyester (b) becomes large at the time of mixed melting with crystalline polyester (a), and transparency gets worse. It is 3–8-mol% especially preferably.

[0009]As such a low melting point elasticity polymer, polyethylene oxide glycol, Polytetramethylene oxide glycol, polypropylene oxide glycol, Copolymerization glycol of ethyleneoxide and propylene oxide, Polyether, such as copolymerization glycol of ethyleneoxide and a tetrahydrofuran, Polylactone, such as aliphatic polyester, such as poly neopentyl azelate, a poly neopentyl horse mackerel peat, and poly neopentyl SEPAKETO, a Poly epsilon-caprolactone, and poly PIBARO lactone, can be shown. Polyethylene oxide glycol, polytetramethylene oxide glycol, etc. are preferably practical. These block copolymerized polyester can be manufactured by the usual condensation-polymerization method.

[0010]As an example of block copolymer polyester (b) used in this invention, A polyethylene terephthalate polyethylene oxide block copolymer, A polyethylene terephthalate polytetramethylene oxide block copolymer, A polybutylene terephthalate polyethylene oxide block copolymer, A polybutylene terephthalate polytetramethylene oxide block copolymer, Polyethylene terephthalate polyethylene oxide, a polypropylene oxide block copolymer, A polytetramethylene terephthalate isophthalate polytetramethylene oxide block copolymer, A polyethylene terephthalate \*\*\*\*\* epsilon-caprolactone block copolymer, A polyethylene terephthalate poly neopentyl SEPAKETO block copolymer, A block copolymer of polyester from JI (4-carboxyphenoxy) ethane and ethylene glycol, and a polyethylene glycol, A block copolymer of polyester from bis(N-PARAKARUBO ethoxyphenyl)adipamide and ethylene glycol and a polyethylene glycol, etc. can be raised.

[0011]In this invention, a compounding ratio of crystalline polyester (a) of a polyester system resin mixture layer (B) and block copolymerized polyester (b) receives 98 to 70 % of the weight of crystalline polyester (a). It is required to blend block copolymerized polyester (b) at 2 to 30% of the weight of a rate, and they are 95 to 75 % of the weight of crystalline polyester (a), and 5 to 25 % of the weight of block copolymerized polyester (b) preferably. When block copolymerized polyester (b) is less than 2 % of the weight, printing nature made into the purpose is not only obtained, but it tears and a sex gets worse. When block copolymerized polyester (B) exceeds 30 % of the weight, the dimensional stability of NI axis extension polyester film and rigidity fall, and film production nature also gets worse.

[0012]This polyester resin mixture layer (B) has a copolymer more preferred than the melting point of polyester used for a polyester resin layer (A) which has not less than 10 °C and the desirable melting point high not less than 20 °C.

[0013]Thickness of a polyester resin mixture layer (B) has [ not less than 5% of overall thickness Mino ] preferably preferred not less than 5% 40% or less of thickness 60% or less. When thickness of a polyester resin mixture layer (B) is less than 5% of overall thickness Mino, intensity of a film obtained becomes low and trouble comes out practically. If thickness of a polyester resin mixture layer (B) crosses 60% of overall thickness Mino, it will twist with tear nature made into the purpose, and a sex will fall. Whichever of three layers (B/A/B) or two-layer (B/A) composition may be sufficient as lamination of a polyester resin layer (A) and a polyester resin mixture layer (B). Although film thickness used with a bag for a package which is a use which makes thickness of an oriented film the purpose of this invention, adhesive tape, etc. is 12micro to 30micro, it is not limited in particular.

[0014]polyester film of this invention is a range which does not check an effect of this invention, and various publicly known add-in material, for example, lubricant, paints, an antioxidant, a spray for preventing static electricity, etc. may be added.

[0015]the unstretched films which were fused independently, were extruded and were fabricated at temperature more than the melting point from a dice exit in two or more extrusion machines with an unextended laminated film here — warming — a method of laminating in the state is mentioned. As an option, a method of carrying out the melting lamination of the melting film of another side is shown in the surface of one unstretched film. There is a method of extruding from a dice exit in the state where it furthermore laminated with a coextrusion process as an option, and fabricating an unstretched film.

[0016]Next, an example of a manufacturing method of this invention film is explained. Polyester resin (A) and a polyester resin mixture (B) which carried out vacuum drying are supplied to two sets of respectively different extrusion machines, Melting extrusion is carried out at temperature more than each melting point, a compound adapter is passed, cooling solidification is extruded and carried out from a cap as two-sort three layers (B/A/B) or two-sort two-layer (B/A), and an unextended laminated film is fabricated.

[0017]Thus, beyond a high temperature of the second order transition points of polyester resin (A) and a polyester resin mixture (B) performs uniaxial stretching or biaxial stretching for an obtained unextended laminated film at temperature below the melting point of polyester resin (A). In the case of uniaxial stretching, it is three to 5 times preferably at least 1.5 or more times, and, in the case of biaxial stretching, they are nine to 16 times preferably two to 30 times in extension area. In the case of biaxial stretching, extension or simultaneous extension may be sufficient one by one. This oriented film is heat-treated at a temperature lower than the melting point of a polyester resin mixture layer (B) more highly than the melting point of a polyester resin layer (A). It cannot be overemphasized that relaxation processing may be performed in this heat treatment if needed.

[0018]While molecular orientation according [ a polyester resin layer (A) ] to extension almost collapses by first half heat treatment, it twists with tear nature made into the purpose of this invention, a sex is obtained and a polyester resin mixture layer (B) is maintaining molecular orientation further. It has the sea island structure that block copolymerized polyester (b) distributes, in crystalline polyester (a). Since it is torn from an interface of crystalline polyester (a) and block copolymerized polyester (b) when tearing it is thought that a film which has easy tear \*\*\*\*\* which was excellent in this invention, HINERI stability, printing

nature, and an adhesive property is obtained.

[0019]A layer which twists with tear nature to which molecular orientation almost collapsed by heat treatment in a film production line, and gives a sex as this invention was mentioned above, While having an advantage which can set up the film characteristic made into the purpose by balance of a layer which has easy tear \*\*\*\* free, having the original characteristic of polyester of having maintained molecular orientation, since a layer which maintained molecular orientation exists, it has an advantage which can prevent a fracture trouble in film production, etc. A below example explains this invention. About a method of evaluation in an example and a comparative example, it carried out by a method of (1) - (3).

[0020](1) It tore and carried out by a sex; sensory test, and when a 15-mm-wide tape shape sample was cut by hand, a thing which can be cut by hand easily was made into O, and what cannot be cut by hand easily was made into x.

[0021](2) Twist nature; it carried out by a sensory test, and when a 30-mm-wide tape shape sample was twisted by hand, what cannot maintain O and the state where it twisted for what does not return to a basis in the state where it twisted was made into x.

[0022](3) printing nature: — i tape exfoliation: — using a 24-mm width cellophane tape by Sekisui Chemical Co., Ltd., stick carefully so that wrinkles may not go into a printing surface, and carry out application-of-pressure adhesion uniformly, rubbing by a nail from a top. Subsequently, it tore off with sufficient vigor with an end of a tape in the direction of about 45 degrees (angle with a film plane) of front. It classified into the following five steps by observation of remaining ink area.

Remaining ink area (mark)

it came off thoroughly : 1 — it almost came off : 3 which came off about two halves — it came off for a while : 4 — it does not come off at all : It rubbed 5 ii, a test:printer's ink side was carried out outside, and it was made 2 chip boxes, and it pinched with both hands (about 1 cm of both-hands intervals), it rubbed strongly 10 times, peeling condition of ink was seen, and it classified into A and good, and a good three-stage.

[0023](Example 1) Polyethylene isophthalate (A) whose melting point is 200 \*\*, As a polyester resin mixture (B), polyethylene terephthalate of limiting viscosity 0.62 dl/g is used for crystalline polyester (a), What mixed the denaturation PBT which consists of butanediol 96.7mol% and polytetramethylene glycol 3.3mol% at 90 % of the weight/10 % of the weight of a rate was used for block copolymerized polyester (b) as 100 mol of terephthalic acid % and a diol component as a dicarboxylic acid component. The melting point of this polyester resin mixture (B) was 255 \*\*. After fusing these resin with a separate extrusion machine at temperature of 285 \*\* and making this melting object join by a compound adapter, it extruded from a T die, and it quenched on a cooling drum, and an unextended laminated film of three layers of composition (B/A/B) was obtained.

[0024]After extending in a transverse direction at 90 \*\* and, extending this unextended laminated film at 110 \*\* subsequently to [ 3.8 times ] 3.5 times to a lengthwise direction first, performing 3% of relaxation, it heat-treated at temperature of 230 \*\*, and a 25-micro film was obtained. A thickness ratio of B/A/B each class of this film was a ratio of 4/17/4, respectively.

[0025]After performing one side corona discharge treatment of this biaxial oriented film, a gravure roll of 150 meshes was used and printing ink for cellophane (Toyo Ink cello color CCST) was printed completely.

[0026]When a printed film obtained in this way could be easily cut in every direction by a grade which assigns a nail and a film was twisted, the state as it is where it twisted has been maintained. And it rubbed and a test was also good. [ tape ] Troubles, such as a fracture, did not have this film at the time of film production, a slit, and printing, either.

[0027](Example 2) The 25-micro film which changed only a thickness ratio of B/A/B each class into 2/21/2 by the same raw material as Example 1 and a method was obtained. A film obtained in this way was torn and a sex, twist stability, and printing nature were good.

[0028](Comparative example 1) The 25-micro film which changed only a thickness ratio of B/A/B each class into 10/5/10 by the same raw material as Example 1 and a method was obtained. A film obtained in this way was torn and there was no sex, and even if it twisted a film, it returned, and there was no twist stability.

[0029](Comparative example 2) A 25-micro film was obtained with same method as Example 1, conditions, and a thickness ratio except having used only polyethylene terephthalate of limiting viscosity 0.62 dl/g as a polyester resin mixture (B). A film obtained in this way was torn and was inferior in a sex and printing nature.

[0030](Comparative example 3) A 25-micro film was obtained with same method as Example 1, conditions, and a thickness ratio except [ all ] having changed the melting point of polyethylene isophthalate (A) into 245 \*\*. A film obtained in this way was torn and there was no sex, and even if it twisted a film, it returned, and there was no twist stability.

[0031](Comparative example 4) A 25-micro film was obtained with same method as Example 1, conditions, and a thickness ratio except [ all ] having changed temperature of heat treatment into 190 \*\*. A film obtained in this way was torn and there was no sex, and even if it twisted a film, it returned, and there was no twist stability.

[0032]An evaluation result of a film obtained by an example comparative example is shown in Table 1.

[0033]

[Table 1]

項目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
フィルム厚み (μm)	25	25	25	25	25	25	26
構成	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種4層
ポリエステル樹脂(A)の融点(℃)	200	200	200	200	245	200	200
熱処理温度(℃)	230	230	230	230	230	230	190
層構成	4/17/4	2/21/2	4/17/4	10/5/10	4/17/4	4/17/4	4/17/4
ブロック共重合ポリエステル(b)の添加量(重量%)	5	5	10	5	0	5	5
引裂き性	○	○	○	×	△	×	×
テープ剥離性	4	4	5	4	2	4	4
もみテスト	優	優	優	優	可	優	優

[0034]

[Effect of the Invention]Like the above, it tears, the good polyester film of a sex, twist nature, and printing nature is obtained, and it turns out that it is effective as an object for a package.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-337290

(P2002-337290A)

(43)公開日 平成14年11月27日(2002. 11. 27)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

キーワード(参考)

B 3 2 B 27/36

B 3 2 B 27/36

4 F 1 0 0

C 0 8 L 67/02

C 0 8 L 67/02

4 J 0 0 2

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全 5 頁)

(21)出願番号 特願2001-146583(P2001-146583)

(22)出願日 平成13年5月16日(2001. 5. 16)

(71)出願人 000003160

東洋紡績株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号

(72)発明者 今井 一元

愛知県犬山市大字木津字前畑344番地 東  
洋紡績株式会社犬山工場内

(72)発明者 森 啓治

愛知県犬山市大字木津字前畑344番地 東  
洋紡績株式会社犬山工場内

(72)発明者 小田 尚伸

愛知県犬山市大字木津字前畑344番地 東  
洋紡績株式会社犬山工場内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 積層ポリエステルフィルム

(57)【要約】

【課題】 本発明はセロハンの有する特性のうち、易切断性、ひねり固定性、印刷性に注目し、これらの特性を有しさらにポリエステルフィルムの優れた特性である耐熱性、防湿性、透明性、保香性等を合わせて有するフィルムを提供すること。

【解決手段】 ポリエステル樹脂層(A)の少なくとも片面に、全厚みに対し5%以上、60%以下の厚みの、テレフタル酸を80mol%以上含有する結晶性ポリエステル樹脂(a)98~70重量%。融点170℃以上の結晶セグメント及び融点又は軟化点が100℃以下、分子量が400~8000の軟質重合体からなるブロック共重合ポリエステル(b)2~30重量%の混合物からなり、ポリエステル樹脂層(A)の融点よりも10℃以上高い融点を有するポリエステル樹脂混合物層(B)を積層したことを特徴とする積層ポリエステルフィルム。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリエステル樹脂層(A)の少なくとも片面に、全厚みに対し5%以上、60%以下の厚みの下記ポリエステル樹脂層(B)を積層した未延伸積層フィルムを少なくとも一軸延伸後にポリエステル樹脂層

(A)の融点より10℃低い温度以上、かつポリエステル樹脂層(B)の融点未満の温度で熱処理することを特徴とする積層ポリエステルフィルム。

ポリエステル樹脂層(B):テレフタル酸を80mol%以上含有する結晶性ポリエステル樹脂(a)98~70重量%。融点170℃以上の結晶セグメント及び融点或いは軟化点が100℃以下、分子量が400~8000の軟質重合体からなるブロック共重合ポリエステル

(b)2~30重量%の混合物からなり、ポリエステル樹脂層(A)の融点よりも10℃以上高い融点を有するポリエステル樹脂層。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はポリエステル延伸フィルムに関する。更に詳しくは、ポリエステル延伸フィルムの優れた特性である耐熱性、保香性、耐水性等を失うことなく実用面の特性を維持し、接着性、印刷性に優れ、更に良好な引き裂き性とひねり性を具備した包装用フィルムやテープ用フィルムとして有用なポリエステル延伸フィルムに関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来から、切断性の優れたフィルムとしては、セロハンが知られている。セロハンは、その優れた透明性と易切断性、ひねりしわ固定性等の特性により各種包装材料、粘着テープ用として重用されている。しかし、一方ではセロハンは吸湿性を有するため特性が季節により変動し一定の品質のものを常に供給することは困難であった。また、ポリエチレンテレフタレートベースフィルムとした包装用袋や粘着テープなどは、延伸されたポリエチレンテレフタレートフィルムは強靱性、耐熱性、耐水性、透明性などの優れた特性の良さを買われて用いられているが、これらの優れた特性を有する反面、切断しにくく、包装用袋の口を引き裂き難い欠点や、粘着テープが切りにくい欠点、及びひねり固定性が劣るためにひねり包装用に用いることができない等の欠点があった。上記欠点を解決する方法として、一軸方向に配向させたポリエステルフィルム(特公昭55-8551)やジエチレングリコール成分などを共重合させたもの(特公昭56-50692)や低分子量のポリエステル樹脂を用いるもの(特公昭55-20514)などが提案されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記従来技術において一軸方向に配向させる方法は、配向方向へは直線的に容易に切れるが配向方向以外には切れにく

く、またジエチレングリコール成分などを多量に共重合させる方法は、共重合によりポリエチレンテレフタレート本来の特性が失われるという欠点を有している。さらに、低分子量のポリエステル樹脂を用いる方法は、延伸工程での膜破れのトラブルが発生しやすくなり実用的でなかった。すなわち、本発明はセロハンの有する特性のうち、易切断性、ひねり固定性、印刷性に注目し、これらの特性を有しさらにポリエステルフィルムの優れた特性である耐熱性、防湿性、透明性、保香性等を合わせて有するフィルムを得ることを目的として研究し、これを達成したものである。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】本発明は、ポリエステル樹脂層(A)の少なくとも片面に、全厚みに対し5%以上、60%以下の厚みの、テレフタル酸を80mol%以上含有する結晶性ポリエステル樹脂(a)98~70重量%。融点170℃以上の結晶セグメント及び融点又は軟化点が100℃以下、分子量が400~8000の軟質重合体からなるブロック共重合ポリエステル(b)2~30重量%の混合物からなり、ポリエステル樹脂層(A)の融点よりも10℃以上高い融点を有するポリエステル樹脂混合物層(B)を積層した未延伸積層フィルムを、少なくとも一軸延伸後にポリエステル樹脂層(A)の融点より10℃低い温度以上、かつポリエステル樹脂混合物層(B)の融点未満の温度で熱処理することを特徴とする積層ポリエステルフィルムである。

【0005】すなわち、本発明は融点の異なるポリエステル積層フィルムを延伸後、低い融点を有する側のポリエステル樹脂(A)の融点より10℃低い温度以上で、かつ高い融点を有する側のポリエステル樹脂混合物(B)の融点未満の温度で熱処理を実施することにより、ポリエステル樹脂層(A)は延伸工程での配向が崩れポリエステル樹脂の耐熱性、透明性、耐水性、保香性といった特性は維持しつつ引き裂き性とひねり固定性を有する層を構成し、ポリエステル樹脂混合物層(B)は配向を維持したポリエステルフィルム本来の耐熱性等の優れた特性を有する層を構成するという2種の異なる特性を構成する積層フィルムにすることによりポリエステルフィルム本来の優れた特性を有しつつ良好な引き裂き性とひねり固定性を具備するという相反する特性を持ったポリエステルフィルムが得られることを見出し、更に、ポリエステル樹脂混合物層(B)に、テレフタル酸を80mol%以上含有する結晶性ポリエステル樹脂

(a)98~70重量%。融点170℃以上の結晶セグメント及び融点或いは軟化点が100℃以下、分子量が400~8000の軟質重合体からなるブロック共重合ポリエステル(b)2~30重量%の混合物を用いることにより印刷性及び易引裂き性等の著しい改良が見られ、本発明を完成するに至った。

【0006】本発明におけるポリエステル樹脂混合物



(B)に於いて、結晶性ポリエステル(a)はエチレンテレフタレートの主たる繰り返し単位とするポリエステルであり、ポリエチレンテレフタレート(PET)が最適であるが、PETとポリブチレンテレフタレート(PBT)、PETとポリエチレンナフタレート(PEN)などとの共重合体、或いはこれらの混合物を用いることができる。該ポリエステルとしては極限粘度0.50dl/g以上0.90dl/g以下、更に好ましくは0.60dl/g以上0.80dl/g以下である。極限粘度が0.50dl/g未満の場合、フィルムが脆くなり製膜が困難となる。また、0.90dl/gより大きなものを用いた場合、押出し成形性に劣る。結晶性ポリエステル(a)の重合方法は特に限定されないが、極限粘度を好適な範囲とするために固相重合法を用いることができる。

【0007】該ポリエステル樹脂混合物(B)を構成するブロック共重合ポリエステル(b)に於いて、融点170℃以上の結晶セグメントは、その成分だけで重合体としたときに、融点が170℃以上のものであるが、例えばテレフタル酸、イソフタル酸、2・6-ナフタレンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸の残基と、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ペンタメチレングリコール、P-キシレングリコール、シクロヘキサンジメタノール等の脂肪族、芳香族、脂環族ジオールの残基とからなるポリエステル等を用いることができるが、特にテレフタル酸残基が80mol%以上を占めることが望ましい。

【0008】また、分子量400~8000の軟質ポリエステルは、該セグメント構成成分だけで測定した場合の融点或いは軟化点が100℃以下のものをいう。分子量が400以下のものを用いた場合は、得られるブロック共重合ポリエステルは融点が低く粘着性が大であり、フィルムへの配合加工性に困難となる。また、分子量が8000を越える場合は、軟質重合体が層分離し、極めて高い熔融粘度を示し、硬く脆い性質となり、共重合反応後重合釜からの取り出しが困難となったり、また、このブロック共重合ポリエステルのフィルム成形に用いた場合、透明性が不良であったりして好ましくない。特に好ましくは800~4000の分子量のものが良い。また、ブロック共重合ポリエステル中での低融点軟質重合体の割合は1~12mol%の範囲である。1mol%未満の場合軟質重合体としての特性が得られず、12mol%を越えた場合、結晶性ポリエステル(a)との混合熔融時にブロック共重合ポリエステル(b)の分散が大きくなり透明性が悪化する。特に好ましくは3~8mol%である。

【0009】このような低融点軟質重合体としては、ポリエチレンオキシドグリコール、ポリテトラメチレンオキシドグリコール、ポリプロピレンオキシドグリコール、エチレンオキシドとプロピレンオキシドとの共重合グリコール、エチレンオキシドとテトラヒド

ロフランとの共重合グリコール等のポリエーテル、ポリネオペンチルアゼレート、ポリネオペンチルアジペート、ポリネオペンチルセバケート等の脂肪族ポリエステル、ポリ-ε-カプロラクトン、ポリピバロラクトン等のポリラクトンを示すことができる。好ましくはポリエチレンオキシドグリコール、ポリテトラメチレンオキシドグリコール等が実用的である。これらのブロック共重合ポリエステルは通常の縮合重合法によって製造することができる。

10 【0010】本発明において用いるブロック共重合ポリエステル(b)の具体例としては、ポリエチレンテレフタレート-ポリエチレンオキシドブロック共重合体、ポリエチレンテレフタレート-ポリテトラメチレンオキシドブロック共重合体、ポリブチレンテレフタレート-ポリエチレンオキシドブロック共重合体、ポリブチレンテレフタレート-ポリテトラメチレンオキシドブロック共重合体、ポリエチレンテレフタレート-ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシドブロック共重合体、ポリテトラメチレンテレフタレート・イソフタレート-ポリテトラメチレンオキシドブロック共重合体、ポリエチレンテレフタレート-ポリ-ε-カプロラクトンブロック共重合体、ポリエチレンテレフタレート-ポリネオペンチルセバケートブロック共重合体、ジ(4-カルボキシフェノキシ)エタンとエチレングリコールとからのポリエステルとポリエチレングリコールとのブロック共重合体、ビス(N-パラカルボエトキシフェニル)アジパミドとエチレングリコールとからのポリエステルとポリエチレングリコールとのブロック共重合体などを上げることができる。

30 【0011】本発明に於いてポリエステル系樹脂混合物層(B)の結晶性ポリエステル(a)とブロック共重合ポリエステル(b)との配合比は結晶性ポリエステル(a)98~70重量%に対してブロック共重合ポリエステル(b)を2~30重量%の割合で配合することが必要であり、好ましくは結晶性ポリエステル(a)95~75重量%、ブロック共重合ポリエステル(b)5~25重量%である。ブロック共重合ポリエステル(b)が2重量%未満の場合、目的とする印刷性が得られな

40 ばかりでなく、引裂き性も悪化する。また、ブロック共重合ポリエステル(B)が30重量%を越えた場合、二軸延伸ポリエステルフィルムの寸法安定性や剛性が低下し、製膜性も悪化する。

【0012】また、該ポリエステル樹脂混合物層(B)は、ポリエステル樹脂層(A)に用いられるポリエステルの融点よりも10℃以上、好ましくは20℃以上高い融点を有する共重合体が好ましい。

50 【0013】さらに、ポリエステル樹脂混合物層(B)の厚みは全厚みの5%以上、60%以下、好ましくは5%以上40%以下の厚みが好ましい。ポリエステル樹脂混合物層(B)の厚みが全厚みの5%未満の場合は、得

られるフィルムの強度が低くなり、実用上支障がでる。またポリエステル樹脂混合物層(B)の厚みが全厚みの60%を越えると目的とする引き裂き性とひねり性が低下する。またポリエステル樹脂層(A)とポリエステル樹脂混合物層(B)の積層は3層(B/A/B)または2層(B/A)の構成のどちらでもよい。さらに、延伸フィルムの厚みは本発明の目的とする用途である包装用袋や粘着テープなどで使用されるフィルム厚みは12 $\mu$ mから30 $\mu$ mであるが、特に限定されるものではない。

【0014】本発明のポリエステルフィルムは、本発明の効果を阻害しない範囲で、公知の各種添加材、例えば滑剤、顔料、酸化防止剤、帯電防止剤等が添加されていてもよい。

【0015】ここでいう未延伸積層フィルムとは、複数の押出機等の中で、融点以上の温度で別々に熔融し、ダイス出口から押し出して成形した未延伸フィルム同士を加温状態でラミネートする方法が挙げられる。別の方法としては一方の未延伸フィルムの表面に、他方の熔融フィルムを熔融ラミネートする方法がある。さらに別の方法としては共押し出し法により積層した状態でダイス出口より押し出して未延伸フィルムを成形する方法がある。

【0016】次に本発明フィルムの製造法の一例を説明する。真空乾燥したポリエステル樹脂(A)及びポリエステル樹脂混合物(B)をそれぞれ別の2台の押出機に供給し、それぞれの融点以上の温度で熔融押し出しし、複合アダプターを通過させ、2種3層(B/A/B)または2種2層(B/A)として口金より押し出し冷却固化させて未延伸積層フィルムを成形する。

【0017】このようにして得られた未延伸積層フィルムをポリエステル樹脂(A)及びポリエステル樹脂混合物(B)の二次転移点のうちの高い温度以上、ポリエステル樹脂(A)の融点以下の温度で一軸延伸または二軸延伸を行う。一軸延伸の場合は少なくとも1.5倍以上、好ましくは3~5倍であり、二軸延伸の場合は延伸面積で2~30倍、好ましくは9~16倍である。また二軸延伸の場合は逐次延伸でも同時延伸でもよい。この延伸フィルムをポリエステル樹脂層(A)の融点よりも高く、かつポリエステル樹脂混合物層(B)の融点よりも低い温度で熱処理を行う。この熱処理では、必要に応じて弛緩処理を行ってもよいことは言うまでもない。

【0018】前期熱処理によりポリエステル樹脂層(A)は延伸による分子配向が殆ど崩壊し、本発明の目的とする引き裂き性とひねり性が得られ、更に、ポリエステル樹脂混合物層(B)は分子配向を維持しているが、結晶性ポリエステル(a)中にブロック共重合ポリエステル(b)が分散するといった海島構造を持っており、引裂く際に結晶性ポリエステル(a)とブロック共重合ポリエステル(b)との界面から裂かれる為に、本発明の優れた易引裂き性とヒネリ固定性、印刷性及び接

着性を有するフィルムが得られると考えられる。

【0019】本発明は前述した如く、製膜ラインでの熱処理により分子配向が殆ど崩壊した引き裂き性とひねり性を付与する層と、分子配向を維持したポリエステル本来の特性を有しながら易引裂き性を有する層のバランスにより目的とするフィルム特性を自在に設定出来る利点を有するとともに、分子配向を維持した層が存在するために製膜での破断トラブル等も防止できる利点を有する。実施例以下実施例により本発明を説明する。実施例および比較例における評価の方法については(1)~(3)の方法で行った。

【0020】(1)引裂き性：官能テストで行い、幅15mmのテープ状サンプルを手で切断した時、容易に手で切断できるものを○、容易に手で切断できないものを×とした。

【0021】(2)ひねり性：官能テストで行い、幅30mmのテープ状サンプルを手でひねった時、ひねった状態でもとに戻らないものを○、ひねった状態を維持できないものを×とした。

【0022】(3)印刷性：

i) テープ剥離：積水化学社製24mm巾セロハンテープを用い、印刷面にシワが入らない様に注意して貼り付け、上から爪でこすりながら均一に加圧密着させる。次いでテープの一端を持ち前方約45°(フィルム面との角度)の方向へ勢よく引き剥がした。残存インキ面積の観察により次の5段階に区分した。

残存インキ面積(点数)

完全に剥げた : 1

殆ど剥げた : 2

半分程度剥げた : 3

少し剥げた : 4

全然剥げない : 5

ii) もみテスト：印刷インキ面を外側にして2つ折りにし、両手でつまみ(両手間隔約1cm)10回強く揉んで、インキの剥がれ具合を見て優・良・可の3段階に分類した。

【0023】(実施例1) 融点が200℃のポリエチレンイソフタレート(A)と、ポリエステル樹脂混合物(B)として、結晶性ポリエステル(a)に極限粘度0.62dl/gのポリエチレンテレフタレートを用い、ブロック共重合ポリエステル(b)にジカルボン酸成分としてテレフタル酸100mol%、ジオール成分としてブタンジオール96.7mol%、ポリテトラメチレングリコール3.3mol%からなる変性PBTを90重量%/10重量%の割合で混合したものをを用いた。該ポリエステル樹脂混合物(B)の融点は255℃であった。これらの樹脂を285℃の温度で別々の押出機により熔融しこの溶融体を複合アダプターで合流させた後にTダイより押し出し、冷却ドラムで急冷して(B/A/B)構成の3層の未延伸積層フィルムを得た。

【0024】該未延伸積層フィルムをまず縦方向に90℃で3.5倍、次いで横方向に110℃で3.8倍に延伸した後、3%の弛緩を行いつつ230℃の温度で熱処理を行い25μのフィルムを得た。このフィルムのB/A/B各層の厚み比率はそれぞれ4/17/4の比率であった。

【0025】該2軸延伸フィルムの片面コロナ放電処理を行った後にセロハン用印刷インク（東洋インキ社製セロカラーCCST）を150メッシュのグラビアロールを用い、全面印刷した。

【0026】かくして得られた印刷フィルムは爪をあてがう程度でどの方向にも容易に切断することができ、またフィルムをひねると、そのままのひねった状態を維持できた。更に、テープ剥離、もみテストも良好であった。また、本フィルムは製膜、スリット及び印刷時にも破断等のトラブルは無かった。

【0027】（実施例2）実施例1と同じ原料、方法でB/A/B各層の厚み比率のみ2/21/2に変更した25μのフィルムを得た。かくして得られたフィルムは引裂き性、ひねり固定性、印刷性は良好であった。

【0028】（比較例1）実施例1と同じ原料、方法でB/A/B各層の厚み比率のみ10/5/10に変更した25μのフィルムを得た。かくして得られたフィルム\*

\*は引裂き性はなく、またフィルムをひねっても元に戻り、ひねり固定性は無かった。

【0029】（比較例2）ポリエステル樹脂混合物（B）として極限粘度0.62dl/gのポリエチレンテレフタレートのみを用いた以外は実施例1と同じ方法、条件、厚み比率で25μのフィルムを得た。かくして得られたフィルムは引裂き性、印刷性が劣っていた。

【0030】（比較例3）ポリエチレンイソフタレート（A）の融点を245℃に変更した以外は全て実施例1と同じ方法、条件、厚み比率で25μのフィルムを得た。かくして得られたフィルムは引裂き性はなく、またフィルムをひねっても元に戻り、ひねり固定性は無かった。

【0031】（比較例4）熱処理の温度を190℃に変更した以外は全て実施例1と同じ方法、条件、厚み比率で25μのフィルムを得た。かくして得られたフィルムは引裂き性はなく、またフィルムをひねっても元に戻り、ひねり固定性は無かった。

【0032】実施例比較例で得られたフィルムの評価結果を表1に示す。

【0033】

【表1】

項目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
フィルム厚み(μm)	25	25	25	25	25	25	26
構成	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種3層	2種4層
ポリエステル樹脂(A)の融点(℃)	200	200	200	200	245	200	200
熱処理温度(℃)	230	230	230	230	230	230	190
層構成	4/17/4	2/21/2	4/17/4	10/5/10	4/17/4	4/17/4	4/17/4
ブロック共重合ポリエステル(b)の添加量(重量%)	5	5	10	5	0	5	5
引裂き性	○	○	○	×	△	×	×
テープ剥離性	4	4	5	4	2	4	4
もみテスト	優	優	優	優	可	優	優

【0034】

【発明の効果】以上の如く、引裂き性、ひねり性、印刷※

※性の良好なポリエステルフィルムが得られ、包装用として有効なことがわかる。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4F100 AK41A AK41B AK41C AK41K  
AK42 AL02B AL02C AL05B  
AL05C AL06 BA02 BA03  
BA06 BA07 BA10A BA10B  
BA10C BA16 BA26 EH20  
EJ373 EJ38 EJ423 GB15  
JA04B JA04C JA07B JA07C  
JA11B JA11C JK03 YY00B  
YY00C  
4J002 CF00 CF061 CF102 CG00